Medida da Seção de Choque para Absorção de Dois Fótons pela Saturação da Fotoluminescência

Leonardo W. T. Barros*, Gabriel Nagamine, Lázaro A. Padilha Jr.

Resumo

Foi estudado um método para determinar a seção de choque para absorção de dois fótons (δ) de um nanomaterial, obtendo a curva de saturação da fotoluminescência em relação à potência do laser incidente. Tal procedimento poderá ser utilizado para obter δ com menor erro propagado e, dessa forma, ajudar a compreender a estrutura de bandas de nanomateriais semicondutores.

Palavras-chave:

Óptica não-linear, Semicondutores, Nanomateriais

Introdução

Quando um nanomaterial é excitado por um laser com tempo de pulso curto o suficiente, dois fótons podem ser absorvidos simultaneamente, excitando um único elétron para estados de mais alta energia. A este fenômeno de óptica não-linear se dá o nome de absorção de dois fótons (2PA)¹. Em nanomateriais semicondutores, como os pontos quânticos, quando ocorre a 2PA, um elétron da banda de valência se desloca para um estado mais energético, na banda de condução. Ao voltar para seu estado fundamental, ocorre a emissão de um fóton por parte do material. A luz emitida (fotoluminescência) é composta por fótons cujas energias podem ser, então, maiores do que as dos fótons incidentes².

Neste trabalho, testamos um novo procedimento experimental para determinar a seção de choque (δ) para a 2PA de um nanomaterial para determinada frequência do laser incidente. Este procedimento leva em consideração o fato de que apenas excitons (um exciton é um par elétron-buraco) são altamente emissíveis, enquanto multi-excitons não emitem eficientemente.

Consideramos na elaboração deste trabalho que a absorção de dois fótons por parte de um material segue a estatística de Poisson³, e relacionamos δ à fotoluminescência, que será medida. Saturando a fotoluminescência da amostra, é possível determinar δ .

Resultados e Discussão

A configuração do experimento foi feita de maneira a incidir um feixe de laser com potência alta o suficiente para saturar a emissão da amostra, isto é, fazer com que todos os pontos quânticos da amostra tenham realizado a absorção de pelo menos dois fótons.

Pela estatística de Poisson, sabemos que a probabilidade de N fótons serem absorvidos por um ponto quântico é de:

$$P_N = \frac{e^{-\langle N \rangle} \langle N \rangle^N}{N!}$$

Onde $\langle N \rangle$ é o número médio de fótons absorvidos por ponto quântico, que é dado pela expressão em função da fluência de fótons incidentes F e da largura de pulso do laser (τ):

$$\langle N \rangle = \frac{\delta \cdot F^2}{\tau}$$

δ é dada em GM (cm⁴.s/fóton). Sabemos que a fotoluminescência por 2PA, que é o dado que coletaremos, é proporcional à probabilidade de o material absorver dois ou mais fótons. Para as potências que estamos trabalhando, consideramos que P_0 é desprezível. Assim, uma normalização da curva de saturação com base na estatística de Poisson nos permite determinar, a partir da amplitude do sinal medido, a seção de choque para 2PA de um material.

Elaboramos o procedimento experimental utilizando um laser pulsado de femtossegundos com comprimento de onda de 800 nm. O feixe passa por um filtro polarizador e uma placa de meia-onda que, juntos, podem ser ajustados para regular a potência do feixe. O feixe então incide na amostra, que está em uma cubeta de quartzo inserida em um porta-amostra. A fotoluminescência é coletada por um espectrômetro conectado a um computador.

Tendo montado o experimento, coletamos a fotoluminescência da amostra para diferentes valores de potência do laser incidente.

Conclusão

Foi possível observar que a relação entre fotoluminescência e potência do laser incidente não era linear, como esperado para o caso de fotoluminescência por 2PA. O procedimento aqui estudado é capaz de determinar a seção de choque para 2PA de nanomateriais semicondutores. A vantagem deste método para outros já conhecidos, como o Z-Scan e a espectroscopia de fotoluminescência devido à 2PA, é a simplicidade e a menor propagação de erros.

Agradecimentos

Agradeço aos coautores deste trabalho Gabriel Nagamine e Lázaro Padilha, e à todo o grupo do laboratório de espectroscopia ultra-rápida (USL). Agradeço também à CNPQ por financiar este projeto.

¹Kaiser, W.; Garret, C.G., "Two-Photon Excitation in CaF₂: Eu²⁺", Physical Review Letters, vol. 7, Issue 6, pp. 229-231 (1961)

²Blanton, S. A., Hines, M. A., Schmidt, M. E. & Guyot-Sionnest, P. Two-photon spectroscopy and microscopy of II-VI semiconductor nanocrystals. Journal of Luminescence 70, 253-268 (1996).

³G.Nagamine, "Revelando a estrutura eletrônica de nanomateriais através de espectroscopia óptica avançada", 2017.